

PCT

## NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing: 29 March 2001 (29.03.01)	
International application No.: PCT/JP00/06334	Applicant's or agent's file reference: P23467-PO
International filing date: 14 September 2000 (14.09.00)	Priority date: 17 September 1999 (17.09.99)
Applicant: GYOTEN, Hisaaki et al	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:

☒ in the demand filed with the International preliminary Examining Authority on:  
26 January 2001 (26.01.01)

☐ in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was  
☐ was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Facsimile No.: (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  J. Zahra Telephone No.: (41-22) 338.83.38
---	---



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06334

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.<sup>7</sup> H01M 8/10, H01M 8/04, H01M 8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.<sup>7</sup> H01M 8/10, H01M 8/04, H01M 8/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JOIS  
DIALOG (WPI/L)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 6-260197, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 16 September, 1994 (16.09.94), Claims; Par. Nos. [0001] to [0013]; Figs. 1 to 4 (Family: none)	4
X A	EP, 911898, A1 (GENERAL MOTORS CORPORATION & THE REGENTS OF THE UNIVERSITY OF CALIFORNIA), 28 April, 1999 (28.04.99), Claims; Par. Nos. [0003]-[0029]; Figs. 1-4 & JP, 11-219717, A & US, 6063516	1, 3, 4 2
A	JP, 7-68186, A (Toyota Motor Corporation), 14 March, 1995 (14.03.95) (Family: none)	5, 6
PX	JP, 2000-3718, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 07 January, 2000 (07.01.00), Claims (Family: none)	1-2, 5-6
EX	JP, 2000-260455, A (Osaka Gas Co., Ltd.), 22 September, 2000 (22.09.00), Claims (Family: none)	5-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier document but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
12 December, 2000 (12.12.00)

Date of mailing of the international search report  
26 December, 2000 (26.12.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions of claims 1-6 relate to a method for restoring the characteristics of a polymer electrolyte fuel cell. However the special technical feature of the inventions of claims 1, 2 is operating the polymer electrolyte fuel cell in a load current mode different from that in a normal operation for a predetermined time; the special technical feature of the invention of claim 3 is supplying an oxidizer gas and a fuel gas to the anode and cathode respectively and taking out current from the fuel cell body with the polarity opposite; the special technical feature of the invention of claim 4 is supplying oxygen to the cathode or supplying a compressed gas under pressure 1.5 times higher than that in the normal operation at least to one of the cathode and anode; and the special technical feature of the inventions of claims 5, 6 is injecting a cleaning liquid into the cathode and anode through a gas passage. Therefore the technical feature of the inventions of claims 1, 2, that of claim 3, that of claim 4, and that of claims 5, 6 are different from one another.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2001年3月29日 (29.03.2001)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 01/22517 A1

(51) 国際特許分類: H01M 8/10, 8/04, 8/06

(21) 国際出願番号: PCT/JP00/06334

(22) 国際出願日: 2000年9月14日 (14.09.2000)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:  
特願平11/262971 1999年9月17日 (17.09.1999) JP(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 松下電  
器産業株式会社 (MATSUSHITA ELECTRIC INDUS-  
TRIAL CO., LTD.) [JP/JP]; 〒571-8501 大阪府門真市  
大字門真1006番地 Osaka (JP).(GYOTEN, Hisaaki) [JP/JP]; 〒575-0013 大阪府四条  
畷市田原台3-10-2 Osaka (JP). 神原輝壽 (KANBARA,  
Teruhisa) [JP/JP]; 〒563-0021 大阪府池田市畑1-8-13  
Osaka (JP). 内田 誠 (UCHIDA, Makoto) [JP/JP]; 〒  
573-1145 大阪府枚方市黄金野2-16-2 Osaka (JP). 羽藤  
一仁 (HATOH, Kazuhito) [JP/JP]; 〒536-0015 大阪府  
大阪市城東区新喜多1-2-7-2610 Osaka (JP). 酒井 修  
(SAKAI, Osamu) [JP/JP]; 〒572-0055 大阪府寝屋川市  
御幸東町3-14-330 Osaka (JP).(74) 代理人: 石井和郎 (ISHII, Kazuo); 〒541-0041 大阪府  
大阪市中央区北浜2丁目3番6号 北浜山本ビル Osaka  
(JP).

(81) 指定国 (国内): CN, KR, US.

(84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, CH, CY, DE,  
DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE).

(72) 発明者: および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 行天久朗

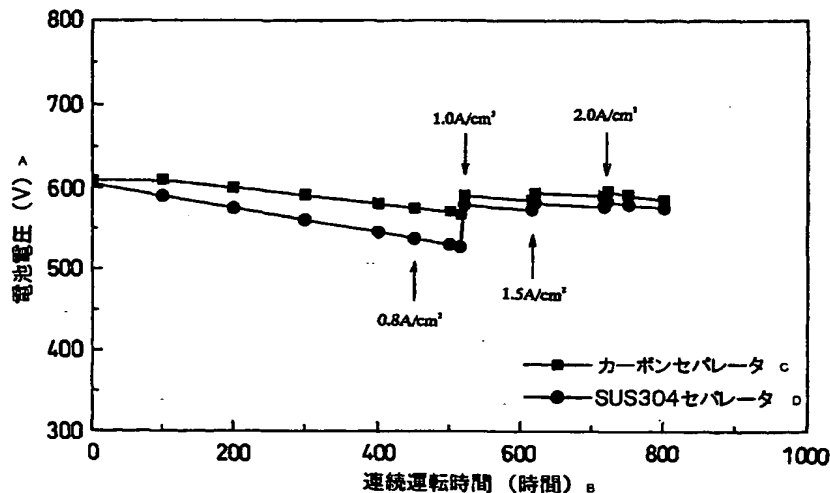
添付公開書類:

— 国際調査報告書

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR RESORTING CHARACTERISTICS OF POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

(54) 発明の名称: 高分子電解質型燃料電池の特性回復方法



A...CELL VOLTAGE (V)

B...CONTINUOUS OPERATING TIME (HOUR)

C...CARBON SEPARATOR

D...SUS304 SEPARATOR

(57) Abstract: The characteristics of a fuel cell are restored by operating the fuel cell in a load current mode different from the mode of the normal operation for a predetermined time, supplying an oxidizer gas and a fuel gas to the anode and cathode respectively, taking out current from the fuel cell body with the polarity opposite, supplying oxygen to the cathode, supplying a compressed gas under pressure 1.5 times higher than that in the normal operation at least to one of the cathode and anode, and injecting a cleaning agent to the cathode and anode through a gas passage. Thus the deteriorated characteristics of a polymer electrolyte fuel cell due to long operation is effectively restored.

[続葉有]

WO 01/22517 A1



— 補正 ・ 説明書

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(57) 要約:

本発明は、通常運転時と異なる負荷電流モードで所定時間運転すること、アノードおよびカソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給し、電池本体から極性を逆にして電流を取り出すこと、カソードに酸素を供給すること、通常運転時より1.5倍以上の加圧ガスをカソードおよびアノードの少なくとも一方に供給すること、またはガス流路からカソードおよびアノードに洗浄液を注入することにより燃料電池の電池特性を回復させる。これにより、高分子電解質型燃料電池の長期運転による特性低下を効果的に回復することができる。

## 明 細 書

## 高分子電解質型燃料電池の特性回復方法

## 技術分野

本発明は、民生用コジェネレーションシステムおよび移動体用の発電器として有用な燃料電池、特に高分子電解質を用いた高分子電解質型燃料電池の特性回復方法に関する。

## 背景技術

燃料電池は、水素などの燃料ガスと空気などの酸化剤ガスとをガス拡散電極で電気化学的に反応させ、電気と熱を同時に供給するものである。このような燃料電池には、用いる電解質の種類によりいくつかのタイプがある。ここで用いられる高分子電解質は、一般的に、主鎖骨格が  $-CF_2-$  からなり、側鎖の末端にスルホン酸が導入されている。

高分子電解質型燃料電池は以下のように作製される。まず、この高分子電解質膜の両面に、上述の高分子電解質のディスパージョンに白金系の金属触媒を担持したカーボン粉末を混合した触媒層用ペーストを塗布し、乾燥することで、電極（空気極であるカソードおよび燃料極であるアノード）を構成する触媒層を形成する。触媒層の外側には、カーボンペーパーなどの導電性多孔質体基材を、空気および燃料ガスを拡散させるために、電極を構成するガス拡散層として配置する。すなわち、前記触媒層とガス拡散層とが電極を構成する。このとき、上述のガス拡散層を構成するカーボンペーパーに触媒層用ペーストを塗布し、これに高分子電解質膜を接合してもよい。このようにして、高分子電解質膜、触媒層およびガス拡散層からなる電解質膜－電極接合体（MEA）を得る。

このMEAの外側には、MEAを機械的に固定するとともに、隣接するMEAを互いに電氣的に直列に接続するための導電性セパレータ板を配置する。MEAとセパレータ板を積層して単電池が得られる。セパレータ板には、電極に反応ガス（酸化剤ガスまたは燃料ガス）を供給し、水素と酸素との反応で生成した水や余剰ガスを運ぶためのガス流路を形成する。セパレータ板には、導電性、ガス気密性および耐食性を兼ね備えたカーボン材料を用いられることが多い。しかし、成形加工性および低コスト性に優れ、セパレータの薄型化が容易であるという観点から、ステンレスなどの金属材料を用いたセパレータも検討されている。また、ガス流路や電極の周囲にはガスケットやシール剤などのシール部材を配置し、反応ガスが直接混合したり、外部に漏洩するのを防止する。

前記単電池を発電装置として用いるときは、出力電圧を高めるため、前記単電池を複数個積層するのが一般的である。それぞれのセパレータ板のガス流路には、マニホールドを通じて外部から水素などの燃料ガスと空気などの酸化剤ガスが供給され、これらを電極のガス拡散層に供給する。これらのガスが触媒層で反応して発生した電流は、電極で集電され、セパレータ板を経て外部に取り出す。

ここで、上述の高分子電解質は水を含有した状態で水素イオンの伝導性を発揮するため、一般的に燃料電池に供給する燃料ガスは加湿される。また、カソードでは電池反応により水が生成するため、電池の内部には常に水が存在している。その結果、電池を長い期間運転すると電池の構成材料であるカーボン材料、シール材料、樹脂材料および金属材料に含まれるイオン性の不純物、無機不純物および有機不純物が溶出するおそれがある。

また、燃料電池に供給される空気には、例えば微量の窒素酸化物および硫黄酸化物などの大気汚染物質が含有されており、また、燃料ガス中



には水素生成器に含まれる金属酸化物が微量混入することもある。

そして、これらの不純物は、高分子電解質膜および電極の触媒層などに蓄積し、高分子電解質の導電性低下および触媒活性の低下をもたらす。その結果、長期にわたる燃料電池の運転中に徐々に電池特性が低下するという問題がある。また、セパレータ板に金属を用いた場合、セパレータ板から溶出した金属イオンにより、高分子電解質膜および触媒層へのダメージがさらに著しくなる。

そこで、本発明の目的は、高分子電解質型燃料電池の電池特性が上述のような不純物の蓄積によって低下した場合に、効率よくその電池特性を回復させる方法を提供することにある。

#### 発明の開示

上述の目的を達成すべく、本発明は、水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一対の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法を提供する。

本発明に係る電池特性回復方法には、主として4つの態様がある。

第1の態様は、前記高分子電解質型燃料電池を通常運転時と異なる負荷電流モードで所定時間運転することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法である。

この場合、前記通常運転時と異なる負荷電流モードが、通常運転時の1.5倍以上の電流での運転モード、または単電池あたりの出力電圧が

0. 2 V 以下になる電流での運転モードであるのが有効である。

第 2 の態様は、通常運転時には前記アノードに燃料ガスを供給し、前記カソードに酸化剤ガスを供給するのに対し、前記アノードおよび前記カソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給し、前記電池本体から極性を逆にして電流を取り出すことで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法である。

第 3 の態様は、前記カソードに酸素を供給すること、または通常運転時より 1.5 倍以上の加圧ガスを前記カソードおよび前記アノードの少なくとも一方に供給することで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法である。

第 4 の態様は、前記ガス流路を経て前記カソードおよび前記アノードに洗浄液を注入することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法である。

この場合、前記洗浄液が、7 未満の pH を有する酸性溶液であるのが有効である。

なお、本発明に係る高分子電解質型燃料電池においては、前記セパレータ板が金属材料を含有していてもよい。

本発明の電池特性回復方法によれば、前記電池本体に蓄積した汚染イオンなどの不純物を前記電池本体の外へ排出することができる。

#### 図面の簡単な説明

図 1 は、本発明の実施例 1 における燃料電池の電池特性が回復する様子を示す図である。

図 2 は、本発明の実施例 3 における燃料電池の電池特性が回復する様子を示す図である。

## 発明を実施するための最良の形態

上述のような高分子電解質型燃料電池で用いる電解質のイオン導電性は、ポリマーの側鎖の先端にあるスルホン基の水素イオンによって発現する。ところが、鉄およびナトリウムなどの金属イオンが汚染イオン（不純物）として存在すると、これらの不純物が水素イオンと置換し、電解質膜のイオン導電性が低下する。また、電解質中に浸入した金属イオンは水素イオンと異なる水和状態を有するため、電解質の含水率が低下し、これによっても電解質膜のイオン導電性が低下する。

このようなイオン導電性の低下や含水率の低下は、電池の直流抵抗成分を増大させるばかりでなく、電極中の触媒層の反応面積を低下させるため、さらに電池特性が低下する。また、上述の金属イオンは、触媒表面に接着したり、酸化物を形成して触媒をシールすることによって、電池特性の低下を生じる。さらに、アニオン性不純物である硫黄酸化物は触媒を被毒して電池特性を低下させ、また酸性物質である窒素酸化物イオンおよびカルボン酸イオンは燃料電池を構成する部材を腐食して変質させる。

このような汚染イオンは、通常運転状態では電池内の特定部位に高濃度で存在している。例えば上述の金属イオンは、電解質膜と電極との界面や、電極内部に練り込んだ高分子電解質部分に、高濃度で分布している。アニオン性の不純物に由来する酸性物質は、ガス拡散層となる電極基材やセパレータ板表面への集積が進む。これらの金属イオン、カチオンアニオン性不純物およびアニオン性不純物は、通常の運転状態では電池外へ排出されることがないため、電池特性が徐々に低下させる原因となる。

電池内に存在するイオン性不純物は、そのイオン種により動きやすいものと動きにくいものがある。しかし、いずれにしても電池内に流れる

電流とともに、一定の割合で移動していく。この点を利用し、電池を通常運転時（例えば定格運転時）より、電流密度を1.5倍以上として負荷を取ると、集積した不純物イオンの分布が変わり、電解質から追い出されて、電極反応の生成水に混じって電池外へ排出することが出来る。

また、燃料極と空気極とでガスの供給を入れ替え、電流方向を逆転させると、不純物イオンが浸入してきた方向へ逆に移動させ排出することができる。

また、反応ガスである燃料ガスおよび酸化剤ガスを加圧したり、酸化剤ガスとして酸素を用いることで、不純物イオンの移動と排出を促進することができる。

また、電解質内の不純物イオンは、水素イオンと置換する形で外部へ排出されるので、電解質や電極を酸性液で洗浄すると外部へ排出することができる。

以下、本発明を実施例を用いて具体的に説明するが、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

#### 実施例 1 および 2

アセチレンブラック系カーボン粉末に、平均粒径約30Åの白金粒子を25重量%担持したものを電極の触媒として用いた。この触媒粉末をイソプロパノールに分散させた分散液に、パーフルオロカーボンスルホン酸の粉末をエチルアルコールに分散した分散液を混合し、触媒層用ペーストを得た。

一方、厚さ300μmのカーボンペーパーをポリテトラフルオロエチレン（PTFE）の水性ディスパーションに浸し、乾燥して撥水性を有するガス拡散層（多孔質電極基材）を得た。このガス拡散層の片面に前記触媒層用ペーストを塗布、乾燥し、触媒層およびガス拡散層からなる

電極を得た。

次に、一對の前記電極で、触媒層を内側にして、高分子電解質膜を挟み、 $110^{\circ}\text{C}$ の温度で30秒間ホットプレスすることにより、MEAを作製した。ここでは、高分子電解質膜として、パーフルオロカーボンスルホン酸からなる $50\text{ }\mu\text{m}$ の厚さの高分子電解質膜（米国デュポン社製のナフィオン）を用いた。

なお、ガス拡散層を構成する導電性多孔質基材としては、上述のカーボンペーパーの他にも、可撓性を有する素材であるカーボン繊維を織って得られるカーボクロス、およびカーボン繊維、カーボン粉末および有機バインダーの混合物を成型して得られるカーボンフェルトなどを用いることもできる。

次に、カーボン粉末材料を冷間プレス成形してカーボン板を得、このカーボン板にフェノール樹脂を含浸して加熱により硬化させ、ガスシール性を向上させた。このカーボン板に、切削加工でガス流路を形成し、本発明のセパレータ板を得た。ガス流路の周辺部には、ガスを供給および排出するためのマニホールド孔、ならびに燃料電池内部の温度を制御するために流す冷却水を供給および排出するためのマニホールド孔を設けた。また、上述のカーボン製セパレータの他に、ステンレス鋼（SUS304）製の金属板に、ガス流路とマニホールド孔を形成した金属製セパレータ板も用意した。

電極面積が $25\text{ cm}^2$ であるMEAの周囲に、ガスシール材であるシリコーンゴム製のガスケットを配し、2枚のカーボン製セパレータ板または2枚のSUS304製のセパレータ板でMEAを挟み、両端から $20\text{ kgf/cm}^2$ の圧力で加圧して締結し、2種類の単電池AおよびBを得た。

実用上の燃料電池では、一般的に、冷却水用流路を形成したセパレー

タ板を挟んで、複数個の単電池を積層して用いる。しかし、前述の汚染イオンが異なる単電池間で移動することは少ないと考え、本実施例での評価は単電池を燃料電池として用いて行った。

上述のようにして作製した単電池に、カソードおよびアノードに加湿した反応ガスを供給するためのガス供給装置、単電池から取り出す負荷電流を設定および調節する電気出力装置、および電池温度を調整する熱調整装置を取り付け、本実施例の高分子電解質型燃料電池AおよびBとした。この熱調整装置には、単電池の面方向に沿って冷却水を流す構造をもたせた。なお、燃料電池においては、この熱調整装置によって排熱を有効利用することも可能である。

以上の方法で作製した燃料電池AおよびBに対して、以下の運転条件を通常モードとして駆動し、その結果、電池特性が初期に比べて低下したもののに対して、本発明の特性回復方法の有効性を評価した。

まず、取り出す出力電流密度を $0.6 \text{ A/cm}^2$ とした。次に、供給した燃料ガスおよび酸化剤ガスに対して、どれだけの割合のガスが実際に電極反応をするかを表す指標であるガス利用率を、アノード側で70%、カソード側で30%とした。また、電池の温度を $75^\circ\text{C}$ とするように冷却水を調整した。そして、供給する反応ガスとしては純水素および空気を用い、ガス流路の入り口から供給する空気の圧力を $0.2 \text{ kgf/cm}^2$ 、水素の圧力を $0.05 \text{ kgf/cm}^2$ とし、ガス流路の出口は大気開放とした。

この条件で燃料電池を駆動した結果、上記燃料電池AおよびBの特性は、いずれも連続500時間の運転で低下してきた。そこで、電流密度を $0.8 \text{ A/cm}^2$ に増加し、この条件で20時間の運転を行った。この後に電流を再度 $0.6 \text{ A/cm}^2$ に戻して、燃料電池AおよびBの運転を行ったが、特性の改善はあまり見られなかった。そこで、再び、電流を

1.  $0\text{ A}/\text{cm}^2$ に増加し、この条件で20時間運転することで、汚染イオンの除去および・排出による電池特性回復処理を試みた。さらに、電流密度を1.5および $2.0\text{ A}/\text{cm}^2$ にして、同様に汚染イオンの除去および排出を試みた。それらの電池連続試験の結果を図1に示した。図1は、実施例1および2における燃料電池AおよびBの連続運転時間と電池電圧の関係から、電池特性の回復の様子を示す図である。

図1において、電流密度を $1.0\text{ A}/\text{cm}^2$ に増やした処理を行うと、カーボン製セパレータ板を用いた燃料電池Aの電池電圧が $570\text{ mV}$ から $590\text{ mV}$ まで回復し、SUS304製セパレータ板を用いた燃料電池Bの電池電圧は $530\text{ mV}$ から $580\text{ mV}$ まで回復した。また、電流密度を $1.5\text{ A}/\text{cm}^2$ および $2.0\text{ A}/\text{cm}^2$ とした場合も、それぞれ同様に電池電圧が改善された。

以上のように出力電流を上げた際に、燃料電池から排出される水の分析を行ったところ、SUS304製セパレータ板を用いた燃料電池Bでは鉄イオンを、また、カーボン製セパレータ板を用いた燃料電池Aではフェノール成分が検出された。この結果は、長期駆動により電池内部に蓄積された汚染イオンが、本発明に係る方法によって除去および排出することができ、これにより電池特性を回復することができたことを実証するものである。

#### 実施例3および4

上記実施例1および2では、連続運転により劣化した燃料電池の特性の回復を、電流密度を変化させることによって行い、本発明の目的を実現できることを確認した。

そこで、本実施例においては、電池特性を回復させる方法として、電流負荷を増大させ、実施例1および2と同様にして作製した単電池Aお

よびBの出力電圧を0.2 V以下にした状態で一定時間保持した後、通常の運転状態に戻す操作を行った。

その結果、このような方法を用いても上述と同様に、出力電圧の回復を図ることができた。

#### 実施例5および6

本実施例においては、実施例1および2と同様にして作製した燃料電池AおよびBを連続500時間運転し、電圧が低下した後、取り出す電流の向きを逆転させることによって電池特性を回復させる方法を実施した。

すなわち、通常運転（出力電流＝0.6 A/cm<sup>2</sup>）時に、水素を流していたアノード側に空気を送り、空気を供給していたカソード側に水素を供給した状態で、出力電流の方向を反対にして0.6 A/cm<sup>2</sup>で20時間運転した。その後、もとの通常運転モードに戻した。このような操作を行うと、カーボン製セパレータ板を用いた燃料電池Aの電圧が570 mVから585 mVに回復し、また、SUS304製セパレータ板を用いた燃料電池Bの電圧が530 mVから565 mVに回復した。

以上のように、負荷電流の大きさや方向を変える方法、およびガス流路に供給する反応ガスの種類を逆転させ、かつ取り出す電流の向きを逆転する方法を行うと、電池内部に蓄積した汚染物質を、排出ガスおよび排出水に混入して排除することができ、その結果、電池特性を回復することができた。

また、反応ガスの供給方向を変える方法、すなわち通常運転における反応ガスの排出口からガスを供給する方法によっても、電池特性を回復することができた。さらに、この電池特性の回復効果は、空気に代えて純酸素を導入する方法、および加圧した反応ガスを供給する方法によっ



て促進できた。

#### 実施例 7 および 8

次に、実施例 1 および 2 と同様にして作製した燃料電池 A および B を用いて、特性が劣化した燃料電池中に存在する汚染イオンの濃度を、燃料電池を強制的に洗浄することで低減し、電池特性を回復する方法を行った。

まず、燃料電池 A および B を実施例 1 と同様に通常運転モードで 5 0 0 時間連続運転し、電池電圧が初期電圧から低下した時、運転を停止した。次に、この燃料電池 A および B を純水中で 1 時間煮沸することで、反応ガスの供給するガス流路を通じて、沸騰した純水を電池内部に循環させた。

この操作の後、再び通常運転モードで運転した結果、カーボン製セパレータ板を用いた燃料電池 A の電池電圧が 5 7 0 mV から 5 8 0 mV に回復し、また、S U S 3 0 4 製セパレータ板を用いた燃料電池 B の電池電圧が 5 3 0 mV から 5 5 5 mV に回復した。

#### 実施例 9 および 1 0

実施例 7 および 8 では、燃料電池の洗浄に沸騰水を用いたが、本実施例では、p H 2 と p H 1 の希硫酸を用いた。実施例 1 および 2 と同様にして作製した燃料電池 A および B を、実施例 1 と同様に通常運転モードで運転した後、運転を停止した。そして、この燃料電池 A および B に対して、カソード側およびアノード側の反応ガスの供給口（ガス流路の入り口）に、チューブを介して希硫酸を導入し、排出口から排出した。2 時間の希硫酸による洗浄の後、純水を導入して十分に洗浄し、排出口から出てくる洗浄水の p H が 5 以上になるまで洗浄した。

この操作の後、再び通常運転モードで運転した結果、カーボン製セパレータ板を用いた燃料電池Aの電池電圧は580mVから588mVまで回復し、SUS304製セパレータ板を用いた燃料電池Bの電池電圧は555mVから572mVに回復した。

以上の実施例では、洗浄液として弱酸性の希硫酸を用いたが、弱アルカリ製、すなわちpH9程度の洗浄液を用いると、若干の洗浄効果は確認できたものの、大きな回復は認められなかった。以上の結果を図2に示した。

このように、電池内部を洗浄液で洗浄することにより、電池の特性を回復できる。その際、より高い温度で洗浄することで回復効果が高くなることも確認した。

また、実施例1で行った高電流密度運転による電池特性回復方法と、弱酸性洗浄水を用いる洗浄による特性回復方法を併用すると、電池電圧の回復がさらに促進できた。さらに、弱酸性洗浄液として希酢酸や硫酸アンモニウムを用いても、同等の効果を有することも確認した。

ここで、以上の実施例1～10で示した本発明の効果を、電池本体の構成要素であるセパレータ板を構成する材料の違いを考慮してまとめる。金属製セパレータを用いた燃料電池Bの電池特性は、長時間の運転中にセパレータ板から溶出する金属イオンにより低下するが、高電流運転および／または弱酸性洗浄水による洗浄によって電池内部に蓄積した金属イオンを除去することにより、回復することができた。

一方、カーボン製セパレータ板を用いる燃料電池Aにおいては、金属製セパレータ板を用いた場合ほど金属イオンや各種のカチオンの溶出はないが、灰化分析によれば微量の鉄およびカルシウムがセパレータ板中に含まれていることがわかった。したがって、電池を長期運転しても金属製セパレータ板を用いた燃料電池ほどではないが、含有されている金

属イオンによって電池特性が若干低下する。加えて、カーボン製セパレータ板のガス気密性を高めるために混合する樹脂から溶出する有機物、ならびに空気中に含まれる微量の硫黄化合物および窒素酸化物により、500時間の連続試験後に電池特性が30mVほど低下したものと考えられる。このようなカーボン製セパレータ板を用いた燃料電池Aに対しても、本発明の電池特性回復方法は有効であった。

本発明の電池特性回復方法を実施することのできる高分子電解質型燃料電池は、電気出力系に負荷電流および出力電圧を調整する手段を有すること、またはガス供給系にガス流路に洗浄液を導入して電池内部を直接洗浄可能な手段を有することが必要である。また、一定期間の経過後、一定期間運転後または電池特性の劣化後、負荷電流および／もしくは出力電圧の調整、または電池内部の洗浄が可能であることが必要である。

このような高分子電解質型燃料電池に搭載される機器としては、上記の電池本体、ガス供給装置、熱調整装置、および電気出力装置に加えて、燃料改質装置、制御装置および充電器などが挙げられる。かかる燃料電池は、例えば燃料電池搭載の電気自動車、コジェネレーションシステムおよびポータブル電源システムなどに用いられる。

#### 産業上の利用の可能性

本発明によれば、高分子電解質型燃料電池の長期運転による特性低下を効果的に回復することができ、その結果、高い耐久性を有する高分子電解質型燃料電池を提供できる。

## 請 求 の 範 囲

1. 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記高分子電解質型燃料電池を通常運転時と異なる負荷電流モードで所定時間運転することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

2. 前記通常運転時と異なる負荷電流モードが、通常運転時の1.5倍以上の電流での運転モード、または単電池あたりの出力電圧が0.2V以下になる電流での運転モードである請求の範囲第1項記載の高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

3. 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記アノードおよび前記カソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給し、前記電池本体から極性を逆にして電流を取り出すことで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回

復方法。

4. 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記カソードに酸素を供給すること、または通常運転時より1.5倍以上の加圧ガスを前記カソードおよび前記アノードの少なくとも一方に供給することで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

5. 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ燃料ガスおよび酸化剤ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記ガス流路を経て前記カソードおよび前記アノードに洗浄液を注入することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

6. 前記洗浄液が、7未満のpHを有する酸性溶液である請求の範囲第5項記載の高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

## 補正書の請求の範囲

[2001年1月30日(30.01.01)国際事務局受理：出願当初の請求の範囲2及び6は取り下げられた；出願当初の請求の範囲1,3-5は補正された。(2頁)]

1. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記高分子電解質型燃料電池を、通常運転時の1.5倍以上の電流での運転モード、または単電池あたりの出力電圧が0.2V以下になる電流での運転モードで所定時間運転することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

2. (削除)

3. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記アノードおよび前記カソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給し、前記電池本体から極性を逆にして電流を取り出すことで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

4. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置し

たカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記カソードに酸素を供給すること、または通常運転時より1.5倍以上の加圧ガスを前記カソードおよび前記アノードの少なくとも一方に供給することで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

5. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記ガス流路を経て前記カソードおよび前記アノードに、7未満のpHを有する酸性溶液を注入することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

6. (削除)

## P C T 1 9 条 ( 1 ) の規定に基づく説明書

請求の範囲第 2 項を削除し、同第 1 項において、通常運転時と異なる負荷電流モードが、通常運転時の 1.5 倍以上の電流での運転モード、または単電池あたりの出力電圧が 0.2 V 以下になる電流での運転モードであることを明確にした。請求の範囲第 6 項を削除し、同第 5 項において、洗浄液が 7 未満の pH を有する酸性溶液であることを明確にした。

また、請求の範囲第 1、3～5 項の前文において、カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスが供給される旨を明確にした。



FIG. 1

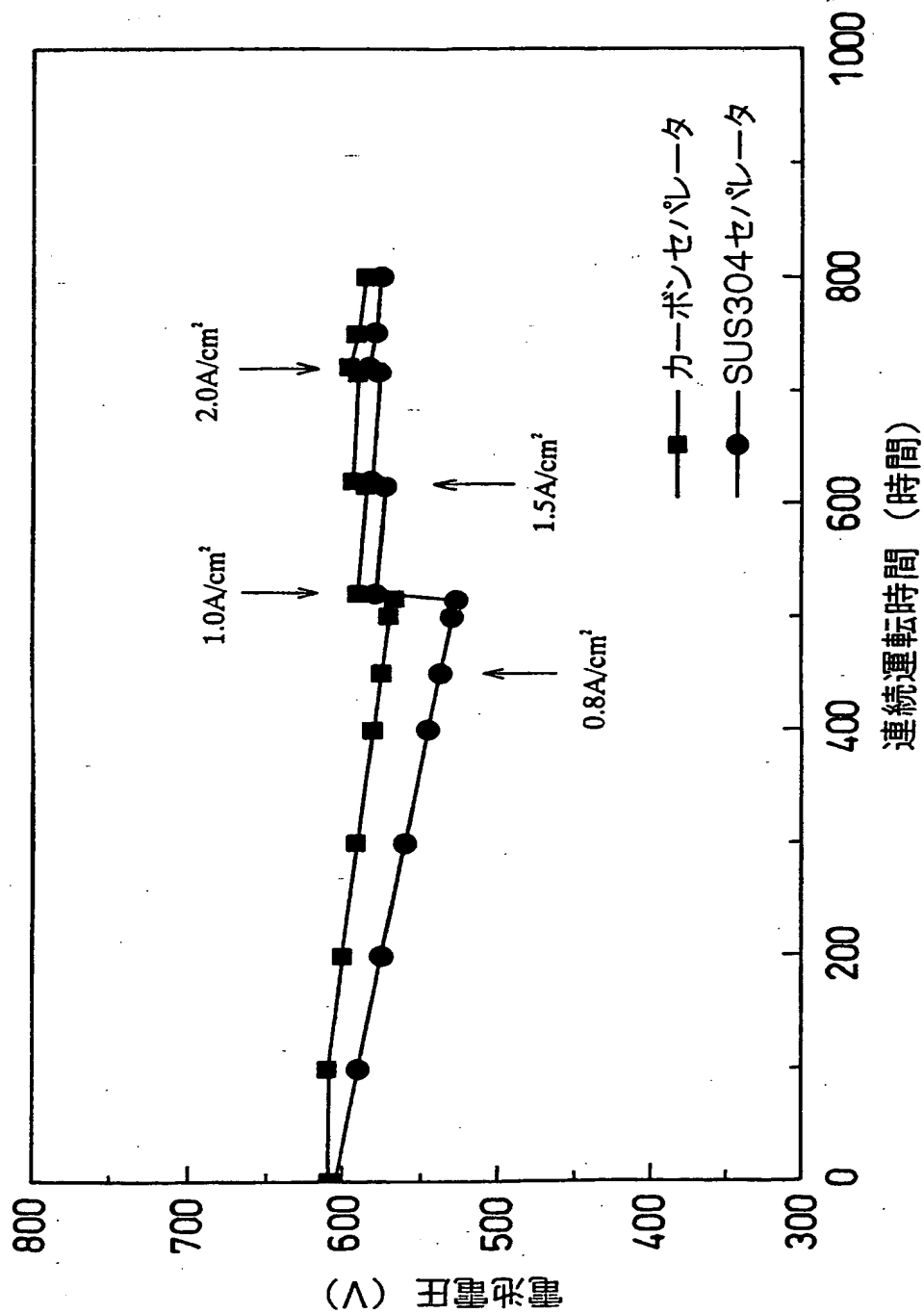
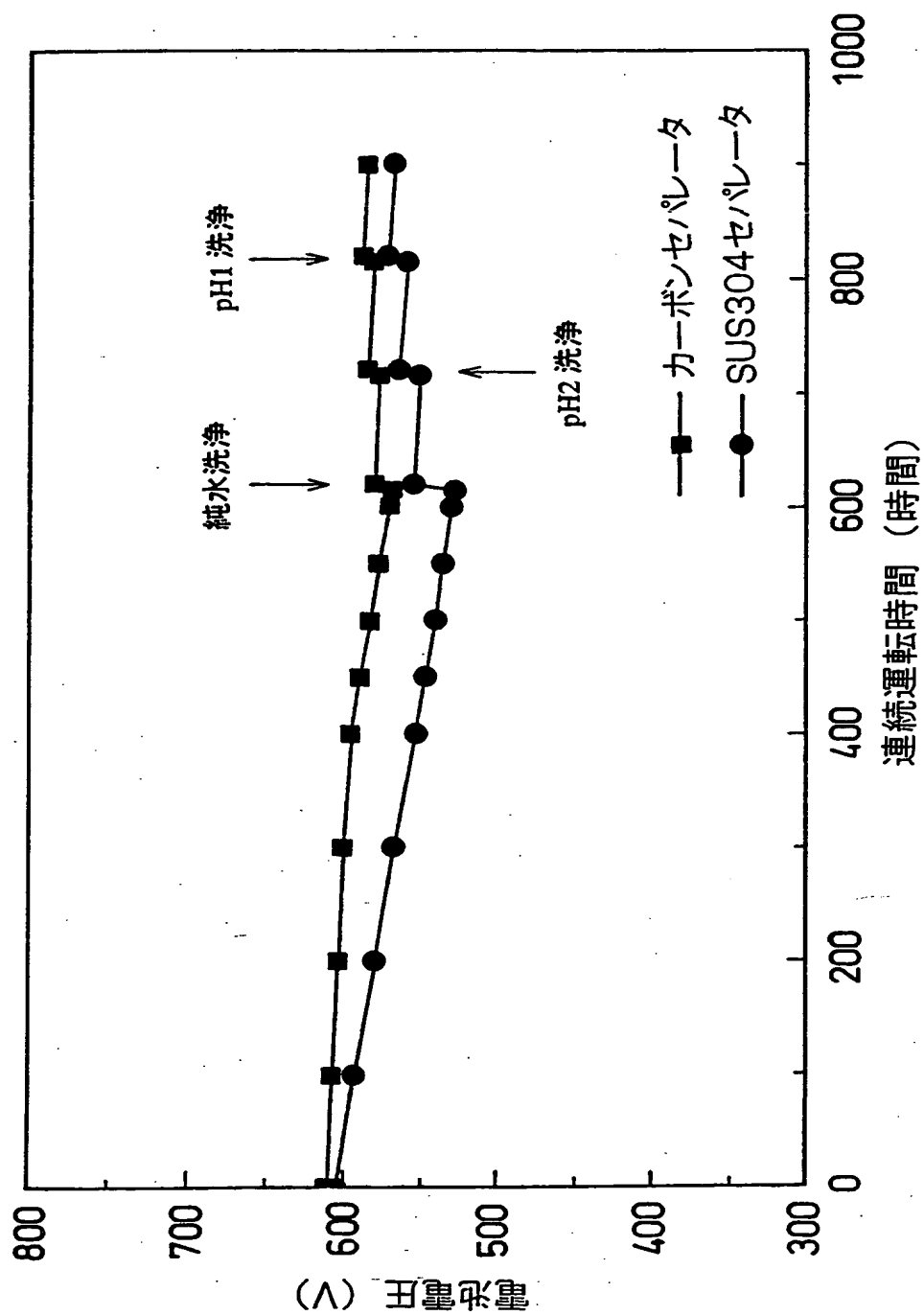




FIG. 2





## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06334

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/10, H01M 8/04, H01M 8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> H01M 8/10, H01M 8/04, H01M 8/06

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1926-1996	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2000
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2000	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2000

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

JOIS  
DIALOG (WPI/L)

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 6-260197, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 16 September, 1994 (16.09.94), Claims; Par. Nos. [0001] to [0013]; Figs. 1 to 4 (Family: none)	4
X A	EP, 911898, A1 (GENERAL MOTORS CORPORATION & THE REGENTS OF THE UNIVERSITY OF CALIFORNIA), 28 April, 1999 (28.04.99), Claims; Par. Nos. [0003]-[0029]; Figs. 1-4 & JP, 11-219717, A & US, 6063516	1, 3, 4 2
A	JP, 7-68186, A (Toyota Motor Corporation), 14 March, 1995 (14.03.95) (Family: none)	5, 6
PX	JP, 2000-3718, A (Matsushita Electric Ind. Co., Ltd.), 07 January, 2000 (07.01.00), Claims (Family: none)	1-2, 5-6
EX	JP, 2000-260455, A (Osaka Gas Co., Ltd.), 22 September, 2000 (22.09.00), Claims (Family: none)	5-6

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
12 December, 2000 (12.12.00)Date of mailing of the international search report  
26 December, 2000 (26.12.00)Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/06334

## Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
2. ☐ Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
3. ☐ Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

## Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The inventions of claims 1-6 relate to a method for restoring the characteristics of a polymer electrolyte fuel cell. However the special technical feature of the inventions of claims 1, 2 is operating the polymer electrolyte fuel cell in a load current mode different from that in a normal operation for a predetermined time; the special technical feature of the invention of claim 3 is supplying an oxidizer gas and a fuel gas to the anode and cathode respectively and taking out current from the fuel cell body with the polarity opposite; the special technical feature of the invention of claim 4 is supplying oxygen to the cathode or supplying a compressed gas under pressure 1.5 times higher than that in the normal operation at least to one of the cathode and anode; and the special technical feature of the inventions of claims 5, 6 is injecting a cleaning liquid into the cathode and anode through a gas passage. Therefore the technical feature of the inventions of claims 1, 2, that of claim 3, that of claim 4, and that of claims 5, 6 are different from one another.

1. ☐ As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. ☒ As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. ☐ As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
4. ☐ No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest ☐ The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.  
☐ No protest accompanied the payment of additional search fees.

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/06334

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M 8/10, H01M 8/04, H01M 8/06

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> H01M 8/10, H01M 8/04, H01M 8/06

## 最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年  
 日本国公開実用新案公報 1971-2000年  
 日本国登録実用新案公報 1994-2000年  
 日本国実用新案登録公報 1996-2000年

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

JOIS  
 DIALOG (WPI/L)

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	J P, 6-260197, A (三菱重工業株式会社), 16. 9 月. 1994 (16. 09. 94), 特許請求の範囲、【0001】～【0013】、及び、【図1】～【図4】 (ファミリーなし)	4
X A	E P, 911898, A1 (GENERAL MOTORS CORPORATION & THE REGENTS OF THE UNIVERSITY OF CALIFORNIA), 28. Apr. 1999 (28. 0 4. 99), Claims; [0003] ～ [0029]; Fig. 1. ～4. & J P, 11-2 19717, A&US, 6063516	1, 3, 4 2
A	J P, 7-68186, A (トヨタ自動車株式会社), 14. 3	5, 6

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

12. 12. 00

国際調査報告の発送日

26.12.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 郵便番号100-8915  
 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小川 進

4 X

8414

電話番号 03-3581-1101 内線 3477

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
PX	月. 1995 (14. 03. 95) (ファミリーなし)  JP, 2000-3718, A (松下電器産業株式会社), 7. 1月. 2000 (07. 01. 00), 特許請求の範囲 (ファミリ ーなし)	1~2, 5~ 6
EX	JP, 2000-260455, A (大阪瓦斯株式会社), 2 2. 9月. 2000 (22. 09. 00), 特許請求の範囲 (ファミ リーなし)	5~6



## 第I欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見 (第1ページの2の続き)

法第8条第3項(PCT17条(2)(a))の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
2. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
3. ☐ 請求の範囲 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第II欄 発明の単一性が欠如しているときの意見 (第1ページの3の続き)

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるときこの国際調査機関は認めた。

請求の範囲1～6はいずれも電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であるものの、請求の範囲1～2は高分子電解質型燃料電池を通常運転時と異なる負荷電流モードで所定時間運転することを特別な技術的特徴とし、請求の範囲3はアノードおよびカソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給し、電池本体から極性を逆にして電流を取り出すことを特別な技術的特徴とし、請求の範囲4はカソードに酸素を供給すること、または通常運転時より1.5倍以上の加圧ガスをカソードおよびアノードの少なくとも一方に供給することを特別な技術的特徴とし、請求の範囲5～6はガス流路を経てカソードおよびアノードに洗浄液を注入することを特別な技術的特徴としている。そうすると、請求の範囲1～2と同3と同4と同5～6とは、互いに、特別な技術的特徴を異にする発明となっている。

1. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求の範囲について作成した。
2. ☒ 追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求の範囲について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求の範囲のみについて作成した。
4. ☐ 出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求の範囲について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- ☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあった。  
☐ 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがなかった。





## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
 Kitahama-yamamoto Building  
 3-6, Kitahama 2-chome, Chuo-ku  
 Osaka-shi, Osaka 541-0041  
 JAPON

NOTIFICATION OF RECEIPT OF  
RECORD COPY

(PCT Rule 24.2(a))

Date of mailing (day/month/year) 17 October 2000 (17.10.00)	IMPORTANT NOTIFICATION
Applicant's or agent's file reference P23467-PO	International application No. PCT/JP00/06334

The applicant is hereby notified that the International Bureau has received the record copy of the international application as detailed below.

Name(s) of the applicant(s) and State(s) for which they are applicants:

MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. (for all designated States except US)  
 GYOTEN, Hisaaki et al (for US)

International filing date : 14 September 2000 (14.09.00)

Priority date(s) claimed : 17 September 1999 (17.09.99)

Date of receipt of the record copy  
by the International Bureau : 03 October 2000 (03.10.00)

List of designated Offices :

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
 National : CN, KR, US


## ATTENTION

The applicant should carefully check the data appearing in this Notification. In case of any discrepancy between these data and the indications in the international application, the applicant should immediately inform the International Bureau.

In addition, the applicant's attention is drawn to the information contained in the Annex, relating to:

- ☒ time limits for entry into the national phase
- ☒ confirmation of precautionary designations
- ☒ requirements regarding priority documents

A copy of this Notification is being sent to the receiving Office and to the International Searching Authority.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  Y. KUWAHARA   Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---



## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

From the INTERNATIONAL BUREAU

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

To:

ISHII, Kazuo  
Kitahama-yamamoto Building  
3-6, Kitahama 2-chome, Chuo-ku  
Osaka-shi, Osaka 541-0041  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 17 November 2000 (17.11.00)	
Applicant's or agent's file reference P23467-PO	<b>IMPORTANT NOTIFICATION</b>
International application No. PCT/JP00/06334	International filing date (day/month/year) 14 September 2000 (14.09.00)
International publication date (day/month/year) Not yet published	Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al	

1. The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
2. This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
3. An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
4. The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, **the attention of the applicant is directed** to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
17 Sept 1999 (17.09.99)	11/262971	JP	06 Nove 2000 (06.11.00)



The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  Magda BOUACHA  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--





PCT

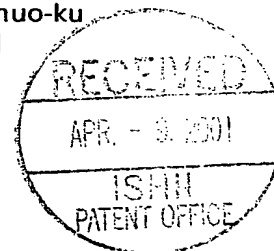
**NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE  
COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL  
APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES**

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
Kitahama-Yamamoto Building  
3-6, Kitahama 2-chome, Chuo-ku  
Osaka-shi, Osaka 541-0041  
JAPON



Date of mailing (day/month/year) 29 March 2001 (29.03.01)		
Applicant's or agent's file reference P23467-PO		<b>IMPORTANT NOTICE</b>
International application No. PCT/JP00/06334	International filing date (day/month/year) 14 September 2000 (14.09.00)	
		Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al		

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:  
KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 29 March 2001 (29.03.01) under No. WO 01/22517

**REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)**

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

**REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))**

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

<p>The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland</p> <p>Facsimile No. (41-22) 740.14.35</p>	<p>Authorized officer J. Zahra</p> <p>Telephone No. (41-22) 338.83.38</p>
---	---





## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

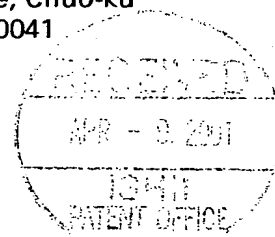
INFORMATION CONCERNING ELECTED  
OFFICES NOTIFIED OF THEIR ELECTION

(PCT Rule 61.3)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

ISHII, Kazuo  
 Kitahama-Yamamoto Building  
 3-6, Kitahama 2-chome, Chuo-ku  
 Osaka-shi, Osaka 541-0041  
 JAPON



Date of mailing (day/month/year) 29 March 2001 (29.03.01)		
Applicant's or agent's file reference P23467-PO		IMPORTANT INFORMATION
International application No. PCT/JP00/06334	International filing date (day/month/year) 14 September 2000 (14.09.00)	
		Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD. et al		

1. The applicant is hereby informed that the International Bureau has, according to Article 31(7), notified each of the following Offices of its election:

EP : AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE  
 National : CN, KR, US

2. The following Offices have waived the requirement for the notification of their election; the notification will be sent to them by the International Bureau only upon their request:

None

3. The applicant is reminded that he must enter the "national phase" before the expiration of 30 months from the priority date before each of the Offices listed above. This must be done by paying the national fee(s) and furnishing, if prescribed, a translation of the international application (Article 39(1)(a)), as well as, where applicable, by furnishing a translation of any annexes of the international preliminary examination report (Article 36(3)(b) and Rule 74.1).

Some offices have fixed time limits expiring later than the above-mentioned time limit. For detailed information about the applicable time limits and the acts to be performed upon entry into the national phase before a particular Office, see Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The entry into the European regional phase is postponed until 31 months from the priority date for all States designated for the purposes of obtaining a European patent.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer:  J. Zahra  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	--



PATENT COOPERATION TREATY

PCT

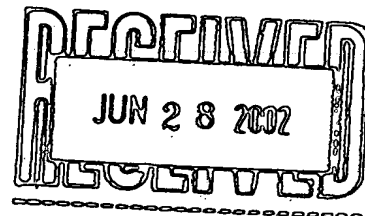
INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

47  
Translation  
10/088,111

Applicant's or agent's file reference P23467-PO	<b>FOR FURTHER ACTION</b> See Notification of Transmittal of International Preliminary Examination Report (Form PCT/IPEA/416)	
International application No. PCT/JP00/06334	International filing date (day/month/year) 14 September 2000 (14.09.00)	Priority date (day/month/year) 17 September 1999 (17.09.99)
International Patent Classification (IPC) or national classification and IPC H01M 8/10, 8/04, 8/06		
Applicant MATSUSHITA ELECTRIC INDUSTRIAL CO., LTD.		

<p>1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36.</p> <p>2. This REPORT consists of a total of <u>5</u> sheets, including this cover sheet.</p> <p><input checked="" type="checkbox"/> This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and/or drawings which have been amended and are the basis for this report and/or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 607 of the Administrative Instructions under the PCT).</p> <p>These annexes consist of a total of <u>2</u> sheets.</p>	
<p>3. This report contains indications relating to the following items:</p> <p>I <input checked="" type="checkbox"/> Basis of the report</p> <p>II <input type="checkbox"/> Priority</p> <p>III <input type="checkbox"/> Non-establishment of opinion with regard to novelty, inventive step and industrial applicability</p> <p>IV <input checked="" type="checkbox"/> Lack of unity of invention</p> <p>V <input checked="" type="checkbox"/> Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement</p> <p>VI <input checked="" type="checkbox"/> Certain documents cited</p> <p>VII <input type="checkbox"/> Certain defects in the international application</p> <p>VIII <input type="checkbox"/> Certain observations on the international application</p>	



Date of submission of the demand 26 January 2001 (26.01.01)	Date of completion of this report 23 October 2001 (23.10.2001)
Name and mailing address of the IPEA/JP	Authorized officer
Facsimile No.	Telephone No.

RECEIVED  
JAN 10 1964  
U.S. AIR FORCE  
HEADQUARTERS  
WASHINGTON, D.C.

## INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/06334

## I. Basis of the report

1. With regard to the **elements** of the international application:\*

- ☐ the international application as originally filed
- ☒ the description:  
pages 1-13, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the claims:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages 1,3-5, as amended (together with any statement under Article 19  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☒ the drawings:  
pages 1-2, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_
- ☐ the sequence listing part of the description:  
pages \_\_\_\_\_, as originally filed  
pages \_\_\_\_\_, filed with the demand  
pages \_\_\_\_\_, filed with the letter of \_\_\_\_\_

2. With regard to the **language**, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in the language in which the international application was filed, unless otherwise indicated under this item.

These elements were available or furnished to this Authority in the following language \_\_\_\_\_ which is:

- ☐ the language of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)).
- ☐ the language of publication of the international application (under Rule 48.3(b)).
- ☐ the language of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination (under Rule 55.2 and/or 55.3).

3. With regard to any **nucleotide and/or amino acid sequence** disclosed in the international application, the international preliminary examination was carried out on the basis of the sequence listing:

- ☐ contained in the international application in written form.
- ☐ filed together with the international application in computer readable form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in written form.
- ☐ furnished subsequently to this Authority in computer readable form.
- ☐ The statement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond the disclosure in the international application as filed has been furnished.
- ☐ The statement that the information recorded in computer readable form is identical to the written sequence listing has been furnished.

4. ☒ The amendments have resulted in the cancellation of:

- ☐ the description, pages \_\_\_\_\_
- ☒ the claims, Nos. 2,6
- ☐ the drawings, sheets/fig \_\_\_\_\_

5. ☐ This report has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have been considered to go beyond the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).\*\*

\* Replacement sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Article 14 are referred to in this report as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain amendments (Rule 70.16 and 70.17).

\*\* Any replacement sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this report.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/06334

## IV. Lack of unity of invention

1. In response to the invitation to restrict or pay additional fees the applicant has:

- ☐ restricted the claims.
- ☐ paid additional fees.
- ☒ paid additional fees under protest.
- ☐ neither restricted nor paid additional fees.

2. ☐ This Authority found that the requirement of unity of invention is not complied with and chose, according to Rule 68.1, not to invite the applicant to restrict or pay additional fees.

3. This Authority considers that the requirement of unity of invention in accordance with Rules 13.1, 13.2 and 13.3 is

- ☐ complied with.
- ☒ not complied with for the following reasons:

In consideration of the prior art disclosed in the specification, claims 1, 3, 4 and 5 are considered to have the following as special technical features respectively:

Claim 1

A. To operate a polymer electrolyte fuel cell in an operation mode with an at least 1.5 times higher current than in normal operation for a predetermined time

B. To operate the polymer electrolyte fuel cell in an operation mode with a current keeping the output voltage per single cell at 0.2V or lower for a predetermined time

Claim 3

C. To supply an oxidizer gas and a fuel gas respectively to the anode and the cathode to take out current from the fuel cell body with the opposite polarity

Claim 4

D. To supply oxygen to the cathode

E. To supply an at least 1.5 times higher pressure gas than in ordinary operation to at least one of the cathode and anode

Claim 5

F. To inject an acid solution having a pH lower than 7 into the cathode and anode through a gas passage

Since the above "special technical features" A-F are not identical to one another and do not correspond to one another, this international application is considered to have six inventions corresponding to the above "special technical features" A-F which are different from one another.

4. Consequently, the following parts of the international application were the subject of international preliminary examination in establishing this report:

- ☐ all parts.
- ☒ the parts relating to claims Nos. 1,3-5





# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/06334

## V. Reasoned statement under Article 35(2) with regard to novelty, inventive step or industrial applicability; citations and explanations supporting such statement

### 1. Statement

Novelty (N)	Claims	1,3,5	YES
	Claims	4	NO
Inventive step (IS)	Claims	1,3,5	YES
	Claims	4	NO
Industrial applicability (IA)	Claims	1,3-5	YES
	Claims		NO

### 2. Citations and explanations

Document 1: WO, 94-10716, A1 (Ballard Power Systems Inc.), 11 May, 1994 (11.05.94), the claims; Disc. line 19, page 1 to line 13, page 10; Disc. line 27, page 20 to line 30, page 30; Figs. 1-5 & JP, 8-507405, A, the claims; line 9, page 9 to line 18, page 14; line 24, page 20 to line 10, page 27; Figs. 1-5  
 Document 2: JP, 54-144934, A (Fuji Denki Seizo K.K.), 12 November, 1979 (12.11.79), the claims (Family: none)  
 Document 3: JP, 6-260197, A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 16 September, 1994 (16.09.94) (Family: none)  
 Document 4: EP, 911898, A1 (General Motors Corporation & The Regents of the University of California), 28 April, 1999 (28.04.99) & JP, 11-219717, A & US, 6063516, A  
 Document 5: JP, 7-68186, A (Toyota Motor Corporation), 14 March, 1995 (14.03.95) (Family: none)

The subject matter of claim 4 does not appear to be novel in view of newly cited document 1. Document 1 describes a method for restoring the cell characteristics of a fuel cell by supplying oxygen to a cathode of a polymer electrolyte fuel cell having the cell body comprising laminates of single cells, each sandwiched by a pair of conductive separator boards formed with gas passages for supplying and discharging an oxidizer gas and a fuel gas respectively to/from the cathode and anode installed in positions in which they sandwich a hydrogen-ion-conductive polymer electrolyte film, means to supply and discharge the oxidizer gas and the fuel gas to/from the cell body, and means to control taking-out of electric power generated in the cell body.

The subject matter of claim 4 does not appear to involve an inventive step in view of newly cited document 2. A person skilled in the art could have easily conceived of applying the method of restoring the cell characteristics of the fuel cell by supplying a gas pressurized to a higher level than in ordinary operation to the cathode or the anode, to the commonly-known polymer electrolyte fuel cell comprising a hydrogen-ion-conductive polymer electrolyte film sandwiched between the cathode and anode.

The subject matters of claims 1, 3 and 5 appear to be novel and to involve an inventive step in view of newly cited documents 1 and 2 and documents 3-5 which are prior art documents cited in the ISR. None of these prior art documents describes or suggests a method for restoring the characteristics of a polymer electrolyte fuel cell by operating a polymer electrolyte fuel cell in an operating mode with at least 1.5 times higher current than in ordinary operation for a predetermined time or in an operating mode with a current keeping the output voltage per single cell at lower than 0.2V for a predetermined time; by supplying an oxidizer gas and a fuel gas respectively to the anode and cathode and taking out current with opposite polarity from the cell body; or by injecting an acid solution having a pH of less than 7 into the cathode and anode through a gas passage.



# INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT/JP00/06334

## VI. Certain documents cited

### 1. Certain published documents (Rule 70.10)

Application No. Patent No.	Publication date (day/month/year)	Filing date (day/month/year)	Priority date (valid claim) (day/month/year)
JP 11-345624 A (E,X)	14 December 1999 (14.12.1999)	01 June 1998 (01.06.1998)	
JP 2000-3718 A (E,X)	07 January 2000 (07.01.2000)	15 June 1998 (15.06.1998)	
JP 2000-260455 A(E,X)	22 September 2000 (22.09.2000)	04 March 1999 (04.03.1999)	

### 2. Non-written disclosures (Rule 70.9)

Kind of non-written disclosure	Date of non-written disclosure (day/month/year)	Date of written disclosure referring to non-written disclosure (day/month/year)



REC'D 09 NOV 2001

WIPO PCT

PCT

## 国際予備審査報告

(法第12条、法施行規則第56条)  
[PCT36条及びPCT規則70]

出願人又は代理人 の書類記号 P 2 3 4 6 7 - P O	今後の手続きについては、国際予備審査報告の送付通知（様式PCT/ I P E A / 4 1 6）を参照すること。	
国際出願番号 PCT / J P 0 0 / 0 6 3 3 4	国際出願日 (日.月.年) 1 4 . 0 9 . 0 0	優先日 (日.月.年) 1 7 . 0 9 . 9 9
国際特許分類 (IPC) Int. Cl <sup>7</sup> H 0 1 M 8 / 1 0, H 0 1 M 8 / 0 4, H 0 1 M 8 / 0 6		
出願人 (氏名又は名称) 松下電器産業株式会社		

1. 国際予備審査機関が作成したこの国際予備審査報告を法施行規則第57条（PCT36条）の規定に従い送付する。
2. この国際予備審査報告は、この表紙を含めて全部で 6 ページからなる。
- ☒ この国際予備審査報告には、附属書類、つまり補正されて、この報告の基礎とされた及び／又はこの国際予備審査機関に対してした訂正を含む明細書、請求の範囲及び／又は図面も添付されている。  
(PCT規則70.16及びPCT実施細則第607号参照)  
この附属書類は、全部で 2 ページである。
3. この国際予備審査報告は、次の内容を含む。
- I ☒ 国際予備審査報告の基礎
- II ☐ 優先権
- III ☐ 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての国際予備審査報告の不作成
- IV ☒ 発明の単一性の欠如
- V ☒ PCT35条(2)に規定する新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての見解、それを裏付けるための文献及び説明
- VI ☒ ある種の引用文献
- VII ☐ 国際出願の不備
- VIII ☐ 国際出願に対する意見

国際予備審査の請求書を受理した日 2 6 . 0 1 . 0 1	国際予備審査報告を作成した日 2 3 . 1 0 . 0 1	
名称及びあて先 日本国特許庁 (I P E A / J P) 郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官 (権限のある職員) 小川 進	4 X 8 4 1 4
電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 7 7		



## I. 国際予備審査報告の基礎

1. この国際予備審査報告は下記の出願書類に基づいて作成された。(法第6条(PCT14条)の規定に基づく命令に  
応答するために提出された差し替え用紙は、この報告書において「出願時」とし、本報告書には添付しない。  
PCT規則70.16, 70.17)

☐ 出願時の国際出願書類

☒ 明細書 第 1~13 ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 出願時に提出されたもの  
請求の範囲 第 1, 3~5 項、 PCT19条の規定に基づき補正されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
請求の範囲 第 \_\_\_\_\_ 項、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☒ 図面 第 1~2 ~~ページ~~/図、 出願時に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
図面 第 \_\_\_\_\_ ページ/図、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

☐ 明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 出願時に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 国際予備審査の請求書と共に提出されたもの  
明細書の配列表の部分 第 \_\_\_\_\_ ページ、 \_\_\_\_\_ 付の書簡と共に提出されたもの

2. 上記の出願書類の言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願の言語である。

上記の書類は、下記の言語である \_\_\_\_\_ 語である。

- ☐ 国際調査のために提出されたPCT規則23.1(b)にいう翻訳文の言語  
☐ PCT規則48.3(b)にいう国際公開の言語  
☐ 国際予備審査のために提出されたPCT規則55.2または55.3にいう翻訳文の言語

3. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際予備審査報告を行った。

- ☐ この国際出願に含まれる書面による配列表  
☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出された書面による配列表  
☐ 出願後に、この国際予備審査(または調査)機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表  
☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった  
☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

4. 補正により、下記書類が削除された。

☐ 明細書 第 \_\_\_\_\_ ページ  
☒ 請求の範囲 第 2, 6 項  
☐ 図面 図面の第 \_\_\_\_\_ ページ/図

5. ☐ この国際予備審査報告は、補充欄に示したように、補正が出願時における開示の範囲を越えてされたものと認められるので、その補正がされなかったものとして作成した。(PCT規則70.2(c) この補正を含む差し替え用紙は上記1.における判断の際に考慮しなければならず、本報告に添付する。)







## IV. 発明の単一性の欠如

1. 請求の範囲の減縮又は追加手数料の納付の求めに対して、出願人は、

- ☐ 請求の範囲を減縮した。
- ☐ 追加手数料を納付した。
- ☒ 追加手数料の納付と共に異議を申立てた。
- ☐ 請求の範囲の減縮も、追加手数料の納付もしなかった。

2. ☐ 国際予備審査機関は、次の理由により発明の単一性の要件を満たしていないと判断したが、PCT規則68.1の規定に従い、請求の範囲の減縮及び追加手数料の納付を出願人に求めないこととした。

3. 国際予備審査機関は、PCT規則13.1、13.2及び13.3に規定する発明の単一性を次のように判断する。

- ☐ 満足する。
- ☒ 以下の理由により満足しない。

請求の範囲 1、3、4、5 は、明細書中に開示された従来技術を参酌するに、それぞれ次の点を特別な技術的特徴とすると解される。

請求の範囲 1

A. 高分子電解質型燃料電池を通常の運転時の 1.5 倍以上の電流での運転モードで所定時間運転すること

B. 高分子電解質型燃料電池を単電池当たりの出力電圧が 0.2 V 以下になる電流での運転モードで所定時間運転すること

請求の範囲 3

C. アノードおよびカソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給し、電池本体から極性を逆にして電流を取り出すこと

請求の範囲 4

D. カソードに酸素を供給すること

E. 通常運転時より 1.5 倍以上の加圧ガスをカソードおよびアノードの少なくとも一方に供給すること

請求の範囲 5

F. ガス流路を経てカソードおよびアノードに 7 未満の pH を有する酸性溶液を注入すること

そして、上記 A-F の「特別な技術的特徴」は、互いに同一ではないし、互いに対応するものでもないから、この国際出願は上記 A-F のそれぞれ異なる「特別な技術的特徴」に対応した 6 の発明を有するものである。

4. したがって、この国際予備審査報告書を作成するに際して、国際出願の次の部分を、国際予備審査の対象にした。

- ☐ すべての部分
- ☒ 請求の範囲 1, 3 ~ 5 に関する部分





V. 新規性、進歩性又は産業上の利用可能性についての法第12条（PCT35条(2)）に定める見解、それを裏付ける文献及び説明

1. 見解

新規性 (N)	請求の範囲	1, 3, 5	有
	請求の範囲	4	無
進歩性 (IS)	請求の範囲	1, 3, 5	有
	請求の範囲	4	無
産業上の利用可能性 (IA)	請求の範囲	1, 3~5	有
	請求の範囲		無

2. 文献及び説明 (PCT規則70.7)

文献1: WO 94/10716 A1 (BALLARD POWER SYSTEMS INC.), 11. May. 1994 (11. 05. 94), Claims; Disc. page 1 line 19 ~page 10 line 13; Disc. page 20 line 27~page 30 line 30; FIG. 1~5 & JP, 8-507405, A, 特許請求の範囲、第9頁第9行~第14頁第18行、第20頁第24行~第27頁第10行、及び、図1~図5

文献2: JP 54-144934 A (富士電機製造株式会社), 12. 11 月. 1979 (12. 11. 79), 特許請求の範囲 (ファミリーなし)

文献3: JP 6-260197 A (三菱重工業株式会社), 16. 9月. 1994 (16. 09. 94) (ファミリーなし)

文献4: EP 911898 A1 (GENERAL MOTORS CORPORATION & THE REGENTS OF THE UNIVERSITY OF CALIFORNIA), 28. Apr. 1999 (28. 04. 99) & JP, 11-21 9717, A&US, 6063516, A

文献5: JP 7-68186 A (トヨタ自動車株式会社), 14. 3月. 1995 (14. 03. 95) (ファミリーなし)

請求の範囲4記載の発明は、新たに引用した文献1により新規性を有しない。文献1には、水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードのそれぞれに酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一対の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、その電池本体へ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、その電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する、高分子電解質型燃料電池に対して、カソードに酸素を供給することで、燃料電池の電池特性を回復させるという方法が記載されている。

請求の範囲4記載の発明は、新たに引用した文献2により進歩性を有しない。文献2に示されている、通常運転時よりも加圧されたガスをカソードまたはアノードに供給するという燃料電池の電池特性を回復させる方法を、水素イオン伝導性高分子電解質膜をカソードおよびアノードで挟んでなる、周知の高分子電解質型燃料電池に対して適用することは、当業者にとっては、容易に想到し得た事項である。

請求の範囲1, 3, 5に記載された発明は、新たに引用した文献1~2、及び、国際調査報告で引用された先行技術文献である、文献3~5に対し、新規性・進歩性を有する。それらのいずれの先行技術文献にも、高分子電解質型燃料電池を通常運転時の1.5倍以上の電流での運転モードで所定時間運転する、または単電池あたりの出力電圧が0.2V以下になる電流での運転モードで所定時間運転する、あるいは、ア



VI. ある種の引用文献

1. ある種の公表された文書 (PCT規則70.10)

出願番号 特許番号	公知日 (日. 月. 年)	出願日 (日. 月. 年)	優先日 (有効な優先権の主張) (日. 月. 年)
JP 11-345624 A (E, X)	14. 12. 99	01. 06. 98	
JP 2000-3718 A (E, X)	07. 01. 00	15. 06. 98	
JP 2000-260455 A (E, X)	22. 09. 00	04. 03. 99	

2. 書面による開示以外の開示 (PCT規則70.9)

書面による開示以外の開示の種類	書面による開示以外の開示の日付 (日. 月. 年)	書面による開示以外の開示に言及している 書面の日付 (日. 月. 年)
-----------------	------------------------------	--



補充欄 (いずれかの欄の大きさが足りない場合に使用すること)

第 V.2. 欄の続き

ノードおよびカソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給して電池本体から極性を逆にして電流を取り出す、あるいは、ガス流路を経てカソードおよびアノードに7未満のpHを有する酸性溶液を注入するという、高分子電解質型燃料電池の特性回復方法は記載も示唆もされていない。





## 請 求 の 範 囲

1. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記高分子電解質型燃料電池を、通常運転時の1.5倍以上の電流での運転モード、または単電池あたりの出力電圧が0.2V以下になる電流での運転モードで所定時間運転することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

2. (削除)

3. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記アノードおよび前記カソードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給し、前記電池本体から極性を逆にして電流を取り出すことで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

4. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置し



たカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記カソードに酸素を供給すること、または通常運転時より1.5倍以上の加圧ガスを前記カソードおよび前記アノードの少なくとも一方に供給することで、前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

5. (補正後) 水素イオン伝導性高分子電解質膜を挟む位置に配置したカソードおよびアノードを、前記カソードおよびアノードにそれぞれ酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給および排出するためのガス流路を形成した一对の導電性セパレータ板で挟持してなる単電池を積層した電池本体と、前記電池本体へ前記酸化剤ガスおよび燃料ガスを供給排出する手段と、前記電池本体で発生した電力の取出しを制御する手段とを具備する高分子電解質型燃料電池の特性回復方法であって、

前記ガス流路を経て前記カソードおよび前記アノードに、7未満のpHを有する酸性溶液を注入することにより前記燃料電池の電池特性を回復させる高分子電解質型燃料電池の特性回復方法。

6. (削除)

